

自律型資源循環テクノロジーの開発

研究代表者 笹木 圭子
(創造理工学部 環境資源工学科 教授)

1. 研究課題

- ① ウズベキスタンにおける銅浮選尾鉱を利用した光触媒複合体の合成及びそのエネルギー分野および環境分野への応用
- ② 湿式製錬法による未利用一次資源および二次資源からの金回収についての研究
- ③ リチウムイオン電池政局材からの活性物質の分離に関する研究
- ④ 金属接着体・マルチマテリアル分離に適する易解体構造と易解体接着剤の研究開発
- ⑤ 乾式精錬法による二次資源からのレアメタル回収についての研究

2. 主な研究成果

主な成果として、JST SATREPS プロジェクトの一環として進められた上記の①の課題について述べる。ウズベキスタンにおける銅生産プロセスで年間 600,000 トン発生している製錬スラグを利用した光触媒の合成および、グリーン水素製造技術の確立を目的としている。ウズベキスタンは、中央アジアに位置し、年間を通して高い日照率や国土の半分以上を占める砂漠を有していることに特徴づけられる。また、銅生産量が世界 20 位であり、さらに 2026 年までにその生産量を倍増する計画があり、製錬スラグの発生量はさらに増大する。同国にとって非鉄鉱業は重要な産業で、これを持続的なものとしていくには、スラグの付加価値の高い用途を開発していく必要がある。

相手国からの提供試料は、X 線回折、蛍光 X 線分析、X 線吸収微細構造解析を総合すると、 Fe_3O_4 および CuFe_2O_4 を結晶相として含み、そのモル比はおおよそ 1:5 であり、そのほか Cu を含む非晶質相も含まれていると推定された。水素生成実験では、大気下で 5 時間、 900°C で焼成した焼成体と TiO_2 との複合体が最も高い水素生成活性を示し (約 $6 \text{ mmol/g}\cdot\text{h}$)、これは TiO_2 単体の 1.5 倍に相当した。また Fe_3O_4 および CuFe_2O_4 の特級試薬を用い、上述の最適化された試料を模擬したものを TiO_2 との複合化条件の異なる 2 種類を合成し (TiO_2 を金属酸化物の共存下で水熱合成したものと、単独に水熱合成した TiO_2 を金属酸化物と物理的に混合したもの)、光触媒反応による水素生成活性を比較した。その結果、水素生成活性は、 TiO_2 を金属酸化物の共存下で水熱合成したもののほうが物理混合したものよりも高く、実際のスラグを基とした TiO_2 複合体の方が、試薬による模擬試料よりも高かった。このことは、その場合成では、 TiO_2 とそれ以外の金属酸化物との間の界面の接合がより密着していて励起電子の移動に有利であること、さらに模擬試料にはないそのほかの成分の影響があるためと考えられる。結晶相の

うち、 Fe_3O_4 は半導体ではなく、 CuFe_2O_4 はp型半導体であり光励起電子の輸送にかかわってくる。XPSのTi 2pおよびO 1sの結合エネルギーは、 TiO_2 がスラグ焼成物と複合化することによって、高エネルギー側へシフトしたことから、複合体になったときには、 TiO_2 側は正に帯電すると予想される。バンドギャップと価電子帯トップ(VBT)のエネルギー準位をもとに TiO_2 と CuFe_2O_4 のバンドダイアグラムを描くと右図のようになり、2相が接触して光が照射されると、正孔は TiO_2 側から CuFe_2O_4 側へ、励起電子は CuFe_2O_4 側から TiO_2 側へ移動し、励起電子は TiO_2 の伝導帯ボトム(CBB)に蓄積する。蓄積した電子は助触媒であるPt(0)ナノ粒子表面で還元反応に消費され、この光電子励起機構は持続すると考えられる。いわゆるTypeII型に分類される。

この機構は光励起電子が TiO_2 と焼成試料の間に接合部が形成されていることが前提となっている。その接合を支持する結果として、Cu K-edge EXAFS解析から複合化によって、Cu原子にTi原子が配位しているとみられる結果や、逆二重励起光音響分光法による電子トラップ密度分布から、複合体中の TiO_2 の電子トラップ総密度が単体 TiO_2 の半分以下となっていることが挙げられる。密度分布の最も高いエネルギー位置が複合体のほうが TiO_2 単体よりVBTから離れた準位にあることも H_2 生成光触媒活性が高くなる特徴として知られている。

以上より、銅製錬スラグ中の CuFe_2O_4 相が TiO_2 と接合することにより、 TiO_2 単体よりも有意に高い光触媒活性をもって、Hgランプを光源として H_2 生成ができ、その電子励起機構を提案した。

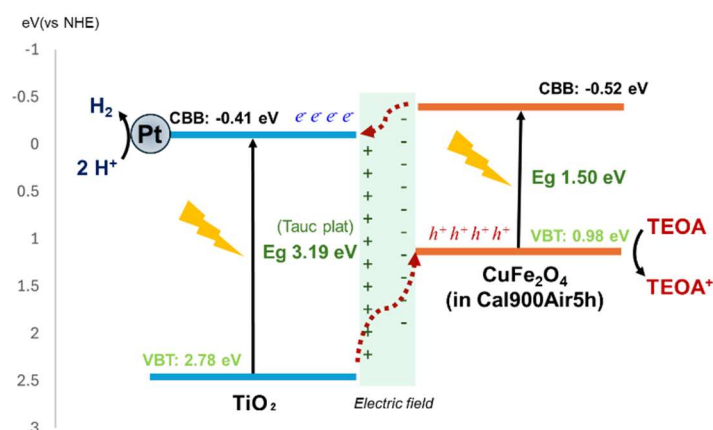


図1 精錬スラグ焼成体と TiO_2 との複合体表面での水素生成光触媒反応機構の提案

3. 共同研究者

- ① 蔡 文安 (理工学術院、講師)
- 山口 勉功 (理工学術院、教授)
- Chitiphon Chuaicham (タイ チュラロンコン大学 講師, 元理工総研、次席研究員)
- Assadawoot Shrikar (タイ チュラロンコン大学 学術研究員)
- 大谷文章 (北海道大学 名誉教授)
- 三木一 (九州大学大学院工学研究院 准教授)
- 清水邦義 (九州大学大学院農学研究院 准教授)
- Zuhra Kadirova (ウズベキスタン、UJICY 副研究所長)

② 三木一（九州大学大学院工学研究院 准教授）
Hayrullo Hamidov（ウズベキスタン ナボイ大学 教授）

③④所 千晴（創造理工学部 環境資源工学科 教授）

⑤山口 勉功（創造理工学部 環境資源工学科 教授）

4. 研究業績

4.1 学術論文

Paulmanickam Koilraj, Rajathsing Kalusulingam, Kannan Srinivasan, Keiko Sasaki, Jun Ho Shim, Alkali-free single-step synthesis of delaminated layered double hydroxides in water via an amino acid-assisted hydrothermal method, *RSC Mater. Adv.*, 6 (2025) 2503-2506.

Cindy, Hirofumi Ichinose, Diego M. Mendoza, Kojo T. Konadu, Ryusei Takimoto, Gde Pandhe Wisnu Suyantara, Keiko Sasaki, Enhancing the biotreatment of carbonaceous matter in double refractory gold ores: The impact of various mediators on laccase performance, *Process Safety and Environmental Protection*, 194 (2025), 1360-1371.

GPW Suyantara, A Ulmaszoda, H Miki, DA Eladl, K. Sasaki, N Okibe, Selective depression of copper-activated pyrite by oxalic acid: Implications for enhanced chalcopyrite–pyrite separation, *Powder Technology*, 454 (2025), 120681.

Quanzhi Tian, Zhen Zhang, Weijie Meng, Yinhai Pan, Shuo Yao, Haijun Zhang, Mengmeng Wang, Keiko Sasaki, Chemical associations of selenium oxyanions in metal oxides derived from layered double hydroxides: Implication for the immobilization of radionuclides, *Environmental Research*, 269 (2025), 120951.

Pilasinee Limsuwan, Jutharat Pongpai, Doungporn Yiamsawas, Wiwut Tanthapanichakoon, Kreangkrai Maneeintr, Jirawat Trakulmututa, Assadawoot Sriksaow, Siwaporn Meejoo Smith, Keiko Sasaki, Chitiphon Chuaicham, Harnessing durian seed and shell waste-derived activated carbon for effective aqueous phenol removal, *Adsorption*, 31 (2025) 51.

Sulakshana Shenoy, Chitiphon Chuaicham, Karthikeyan Sekar, Keiko Sasaki, Seamless carbon nitride growth on bimetallic oxide for antibiotic residue degradation, *Environmental Chemistry Letters*, 23 (2025) 33–39.

Ryusei Takimoto, Cindy, Naoko Okibe, Keiko Sasaki, Bio-oxidation of double refractory gold ores by the mixed culture including acidophilic heterotroph prior to cyanidation, *Journal of Sustainable Metallurgy*, 11 (2025) 3760–3769.

Wenan Cai, Shogo Ito, Eimi Morioka, Chitiphon Chuaicham, Akbarshokh, Ulmaszoda, Hajime Miki, Keiko Sasaki, Synthesis of TiO₂/copper-based oxide photocatalytic composites from copper smelting flotation slag for photocatalytic H₂ evolution, *Materials Today Sustainability*, 31 (2025) 101215.

Peng Dong, Xiansheng Yu, Liguang Wang, Binglin Guo, Quanzhi Tian, Zhongpeng Wang, Keiko Sasaki, Mengmeng Wang, Effects of ZVI in cementitious systems on the leachability of hazardous elements from fly ash, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 158, (2026) 748-755.

Binglin Guo, Cheng Wang, Ping Ye, Huyong Qin, Yuting Chu, Kaixuan Wang, Hengjun Mei,

- Peng Gao, Mechanistic insights into the interaction between strätlingite and I-/IO₃⁻: implications on the iodine migration in alkali activated slag cement, *ACS Inorganic Chemistry*, 65 (2026) 3379-3395.
- Wenan Cai, Yulin Xu, Huiwei Ding, Hajime Miki, Youhei Kawamura, Keiko Sasaki, AI-Guided design of Metal-doped PCN/clay composites for enhanced photocatalytic hydrogen evolution, *Acta Physico-Chimica Sinica*, in press (article number 100246).
- Kalusulingam Rajathsing; Sidra Saleem; Sasaki Keiko; Kim Do Hwan; Shim Jun Ho, Electronic and Interfacial Engineering via Tungsten Incorporation for Robust Overall Water Splitting and Seawater Electrolysis, *ACS Applied Materials & Interfaces*, 18 (2026) 3, 5263–5278.
- Chankhanittha Tammanoon; Yodsinn Nuttapon; Khemthong Pongtanawat; Sangkhun Weradesh; Poncha, Jitprabhat; Punklahan Nutthawadee; Phanthasri Jakkapop; Youngjan Saran; Jiratanachotikul, Anan; Khunphonoi Rattabal; Chuaicham Chitiphon; Trakulmututa Jirawat; Sasaki Keiko; Wannakan, Khemika; Yin Lichang; Butburee Teera, In-situ Growth of Amine-rich g-C₃N₄ with Carbon Defects for Boosting Visible-light Photocatalytic CO₂ Reduction Performance, *ACS Applied Energy Materials*, 9 (2026) 4225–4242.
- 山野 賢一, 小山 恵史, 高谷 雄太郎, 所 千晴."タンクモデルを用いた管理型最終処分場における浸出水量の季節変動予測手法の構築"*Journal of MMIJ*. 2026. vol.142, pp1-7.
- 小山 恵史, 高谷 雄太郎, 濱井 昂弥, 正木 悠聖, 堀内 健吾, 近藤 正隆, 所 千晴."コンクリートスラッジ由来アルカリ材を用いたパッシブトリートメントプロセスにおける坑廃水処理予測モデルの構築", *環境資源工学*. 2025. vol.72, pp117-128.
- Yusuke Furukori, Hisanori Iwai, Masaru Tomoguchi, Kenichi Yamano, Chiharu Tokoro." Leaching Behavior of Trace Elements from Municipal Solid Waste Incineration Ash as Influenced by Addition of Carbonate Ions Leaching Behavior of Trace Elements from Municipal Solid Waste Incineration Ash as Influenced by Addition of Carbonate Ions", *Water, Air, & Soil Pollution*. 2025. vol.237, Issue 11.
- Gakuho Numao, Hisanori Iwai, Akiko Kubota, Keishi Oyama, Hidehiro Kamiya, Masaaki Tokoro, Hiroshi Ozaki, Chiharu Tokoro."Chemical properties of wood pellets and their water extractable organic matter governing pellet disintegration behavior by crushing" *Biomass Futures*. 2026, vol.1, 100022.
- Ryoma Miyamoto, Shinichi Minegishi, Yutaro Takaya, Chiharu Tokoro."High-purity and high-recovery lithium extraction via dual selectivity optimization of ion and water in a batch nanofiltration–RO process for spent LiB leachates" *Chemical Engineering Journal Advances*. 2026. vol.25, 101061.
- Yafan Wang, Yusuf Olalekan Zubair, Chiharu Tokoro."Investigation of In Situ Strategy Based on Zn/Al-Layered Double Hydroxides for Enhanced PFOA Removal: Adsorption Mechanism and Fluoride Effect" *Applied Sciences*. 2025. vol.15, Issue 24, 13064.
- Yusuke Furukori, Hisanori Iwai, Masaru Tomoguchi, Kenichi Yamano, Chiharu Tokoro." Leaching Behavior of Trace Elements from Municipal Solid Waste Incineration Ash as Influenced by Addition of Carbonate Ions Leaching Behavior of Trace Elements from Municipal Solid Waste Incineration Ash as Influenced by Addition of Carbonate Ions" *Water, Air, & Soil Pollution*. 2025. vol.237, article number 636.

- Yanhui Kong, Yutaro Takaya, Mauricio Córdova-Udaeta, Chiharu Tokoro."Lithium extraction from spinel LiMn₂O₄ with simultaneous preparation of λ-MnO₂ under mild conditions using sodium hypochlorite" *Green Chemistry*. 2026. vol.28, pp.351-364.
- Yusuf Olalekan Zubair, Chiharu Tokoro."Removal and stabilization of arsenic (III/V) from water using Ca-based LDH derived from calcium oxide: removal performance and mechanism" *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. 2025, vol.725, Part 2, 137700.
- Yafan Wang, Yusuf Olalekan Zubair, Shuo Pan, Chiharu Tokoro."Mechanism of boron removal and stabilization by in-situ formation of layered double hydroxides: Insight from spectroscopy and DFT studies" *Journal of Environmental Sciences*. 2025. vol.160, pp.569-580.
- Mauricio Córdova-Udaeta, Bowen Cheng, Shigeshi Fuchida, Yutaro Takaya, Jun Horiuchi, Hiroyuki Masuoka, Keishi Oyama, Chiharu Tokoro, "Selective Manganese Precipitation via Neutralization and Ozone Oxidation under pH Conditions Similar to Steel Pickling Wastewater: Thermodynamic Assessment and Experimental XANES Evaluation", *ACS Omega*. 2025, vol.10, Issue 17, pp.18085-18097.
- Takash Murata, Ryuji Otake, Katsunori Yamaguchi, "Phase Equilibria of the SiO₂-CaO-Al₂O₃-TiO_x System Coexisting with Solid Fe at 1623 K", *Metal. Mater. Trans. B*, 56 (2025) , pp.2691-2699.
- Takashi Murata, Tetsuo Oishi, Katsunori Yamaguchi, "Extraction of Terbium from Terbium - Iron Alloys Using Molten Magnesium", *Mater. Trans.* 66 (2025) , pp.724-732.
- Takashi Murata, Tetsuo Oishi, Katsunori Yamaguchi, "Phase Equilibrium of the Mg-Fe-Tb System at 973 and 1273 K and Vacuum Distillation of Mg from Tb-Mg", *J. Sustainable Metallurgy*, 12 (2026) , pp.1448-1461.

4.2 総説・著書

- 所 千晴. “サーキュラーエコノミー実現に必要な分離・濃縮技術” 「技術解説」月刊『技術士』. 2025, 3月号, pp.4-7.
- 所 千晴.” 日本版サーキュラーエコノミー実現を目指した産官学連携と人材育成” 特集 産学連携と人材育成, *金属*. 2025, Vol.95, No.2, pp.20-26.
- 所 千晴.” 持続可能な社会に向けたサーキュラーエコノミーへの期待—第 68 回生活と環境全国大会特別講演から—” *生活と環境* 1. 2025, No.790, pp.23-32.
- 山口勉功, 小川和宏, ” 熔融フラックス法を用いた EV モーターからのレアアースの分離回収” *分離技術*, 55 (2025), pp.57-64.

4.3 招待講演

- Keiko Sasaki, Challenges in Materials Engineering for Circular Economy, International Conference for Analysis in Steel Industry (ICASI) 2025, 11-13th Sep., 2025 (Tokushima).
- Keiko Sasaki, Conversion of industrial wastes into smart materials for green technologies, Almalyk Mining Company, School of Engineering, 20th February, 2026. (Tashkent).
- 笹木圭子、バイオハイドロメタラジーを活用した未利用一次および二次資源からの貴金属および

- 有価金属の回収、住友金属鉱山（株）YMEC 講演会(2026年3月13日、新居浜) 2026.
- 所 千晴. "資源循環と環境分離プロセス" 素材メーカー専門委員会(一般社団法人電子情報技術産業協会主催), (3月19日, 大手センタービル, 東京).2026.
- 所 千晴. "非鉄は文化なり" 第120回レアメタル研究会「鉄と非鉄とレアメタル」(東京大学生産技術研究所レアメタル研究会主催), (3月13日, 東京大学生産技術研究所 An 棟 2F コンベンションホール, 東京・オンライン併用). 2026.
- 所 千晴."蓄電池の資源循環プロセスの現状と課題" 蓄電池関連の政策と資源循環の最前線 (公益財団法人 原総合知的通信システム基金主催), (1月16日, ビジョンセンター赤坂, 東京・オンライン併用). 2026.
- 所 千晴. "リチウムイオン電池リサイクル前処理の現状と課題" 第14回 全固体電池研究セミナー (11月14日, 大阪公立大学 中百舌鳥キャンパス, 大阪). 2025.
- 所 千晴. "サーキュラーエコノミーを支える前処理技術の高度化と太陽光パネルリサイクルへの応用" 第63回技術セミナー (電気硝子工業会主催), (11月12日, 日本ガラス工業センター, 東京). 2025.
- 所 千晴. "バッテリーリサイクル・リユース関連の研究・技術開発紹介" あいち次世代バッテリー推進コンソーシアム 第3回セミナー (11月10日, TKP ガーデンシティ PREMIUM 名古屋新幹線口, 愛知). 2025.
- 所 千晴. "サーキュラーエコノミーに寄与する前処理技術開発戦略と検討例" 2025年電炉鋼材フォーラム (普通鋼電炉工業会主催), (11月6日, 品川フロントビル会議室, 東京). 2025.
- 所 千晴. "サーキュラーエコノミー実現に向けた分離・解体技術の新展開" INCHEM TOKYO 2025 特別講演会 (一般社団法人日本能率協会主催), (9月18日, 東京ビッグサイト 東展示棟, 東京). 2025.
- 所 千晴. "プロセス技術とシステム技術でサーキュラーエコノミーを目指す、産官学連携の場、CVC コンソーシアム" INCHEM TOKYO 2025 「シン・インケム～ベンチャー&アカデミア～」 (一般社団法人日本能率協会主催), (9月18日, 東京ビッグサイト 東展示棟, 東京). 2025.
- 所 千晴. "持続可能な社会の実現に向けた資源循環技術" サーキュラーマテリアル コンソーシアム (京都大学総合生存学館主催), (4月25日, 常盤橋タワー, 東京). 2025.
- 山口勉功, "非鉄冶金研究の醍醐味", 非鉄冶金の重要性と将来性に関するシンポジウム, (9月26日, 東京大学生産技術研究所, 東京). 2025.
- 山口勉功, "Na₂B₄O₇ フラックスを用いた電動車モーターからのレアアースの分離回収", 資源・素材学会 2026年度春季大会, (3月5日, 千葉工業大学, 千葉). 2026.

4.4 受賞・表彰

- (優秀ポスター賞) 森岡映美、蔡文安、笹木圭子, ウズベキスタンにおける銅精錬尾鉱と TiO₂ との複合化による光触媒反応による水素生成活性の増強, 資源・素材学会秋季大会 (札幌) 2025
- (優秀学生賞) 山形 海斗,, 岩井 久典, 瀬元 祐希, 正木 悠聖, 濱井 昂弥, 所 千晴. "酸性鉱山廃水のアルカリ化処理に用いたコンクリート廃材における金属塩被膜現象の機構とそのもみ殻による抑制", 化学工学会 八戸大会 2025 (11月13日, 青森). 2025, C111.
- (優秀ポスター発表賞) 山崎 京, 高谷 雄太郎, 犬束 学, 成田 麻子, 所 千晴. "熱処理・酸処理によるシリコン系太陽光パネルからのシリコンリサイクルに関する基礎検討" 第22回「資源・素材・環境」技術と研究の交流会 (8月8日, 東京). 2025.
- (学生ポスターセッション奨励賞) 渡邊 伊織, 村田 敬, 山口勉功, "Biを用いた Tb-Fe 合金からの Tb の液体金属抽出", 日本鉄鋼協会, 2025年 第189回春季講演大会, (3月10日, 東京). 2025.

(優秀ポスター発表賞) 渡邊 伊織, 村田 敬, 山口勉功, “溶融 Bi, Pb による Tb-Fe 合金からの Tb の抽出”, 第 22 回「資源・素材・環境」技術と研究の交流会 (8 月 8 日, 東京). 2025.

4.5 学会および社会的活動

笹木圭子、日本学会議会員活動

笹木圭子、経済産業省二酸化炭素貯留事業等安全小委員会活動

笹木圭子、三菱マテリアル(株)休廃止鉱山専門委員会活動

笹木圭子、休廃止鉱山における坑廃水処理の高度化技術導入実証事業」有識者委員会委員会活動

5. 研究活動の課題と展望

- ①産業廃棄物を活用した光触媒複合体開発に関する研究については、含有するマグネタイトに光触媒活性がないためこのヘマタイト化(p型半導体)を目指す方向によりさらなる水素生成活性の増強が得られるかどうかを検討課題として残っている。ヘマタイト化については乾式処理条件について山口教授とも相談して数通りの条件を試みたが、理論通りに相変化せず課題があり、引き続き検討していく。また、炭素循環に応用を目指しており、酸化反応ではグルコースから乳酸への転換、還元反応では CO₂ の還元の実験ができるように実験設備を整える。これについては、2026 年度に科研費基盤(B)が採択され、GC の検出器の増設、特注反応容器の設置などの準備が整ったところである。
- ②未利用金鉱石である炭素質金鉱石からのシアンフリー金回収法の確立知見をもとに、金スクラップからの金回収に応用する計画が日本国内の企業と進むことになっている。金含有率、共存元素およびそれらの濃度、さらには金の局在性において、スクラップでは鉱石とは全く異なり、湿式処理を適用する前の前処理法に検討が必要となる。
- ③～⑤ 使用済み金属製品からの物理選別および乾式法に依る製錬も今後日本の自律型資源循環技術には欠かせない継続的な課題が凝集しており、産業界と連携して経済合理性も考慮しながら技術開発を進めていく。